

(19)日本国特許庁 (JP)

(12)公表特許公報 (A)

(11)特許出願公表番号

特表2002-520256
(P2002-520256A)

(43)公表日 平成14年7月9日(2002.7.9)

(51)Int.Cl.⁵

A 01 N 25/08

類別記号

P I

フ-73-1⁶ (参考)

A 01 N 25/08

4 H 0 1 1

(21)出願番号	特願2000-558718(P2000-558718)
(86) (22)出願日	平成11年7月7日(1999.7.7)
(86)著願文提出日	平成12年3月7日(2000.3.7)
(86)国際出願番号	PCT/ES99/00217
(87)国際公開番号	WO00/02448
(87)国際公開日	平成12年1月20日(2000.1.20)
(31)優先権主張番号	P 9801473
(32)優先日	平成10年7月8日(1998.7.8)
(33)優先権主張国	スペイン(ES)
(34)指定国	EP(AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), AU, BR, CA, IL, JP, MX, NZ, US, ZA

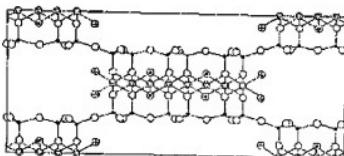
(71)出願人	コンセボ・スペリオール・デ・インベステイガシオネス・シエンティフィカス CONSEJO SUPERIOR DE INVESTIGACIONES CIENTÍFICAS スペイン、エ-28006マドリッド、カリエ・セラノ117番
(71)出願人	ウニベルシッド・ポリテクニカ・デ・バレンシア スペイン、エ-46022バレンシア、カミノ・デ・ペラ
(74)代理人	弁理士 青山 瑞(外1名)

最終頁に続く

(54)【発明の名称】セビオライト上に支持された信号化学物質のエミッター、その調製方法および適用

(57)【要約】

本発明は、支持体と該支持体に載着された信号化学物質とを含んでなる信号化学物質のエミッターであって、前記支持体がセビオライトであること、および、前記信号化学物質の制御された放出速度特性が得られるように、前記セビオライトと前記信号化学物質との間の保持力が調整されていることを特徴とする信号化学物質のエミッターを提供する。該エミッターの製造方法は、エミッターが信号化学物質の制御された放出速度特性を有するような力で信号化学物質が保持されるように、天然セビオライトの改変を行い、信号化学物質に該セビオライトを結合させることを含んでなる。上記エミッターは農業分野において農作物における昆虫異常発生の制御に有用である。



(2)

特表2002-520256

【特許請求の範囲】

【請求項1】 支持体と該支持体に吸着された信号化学物質とを含んでなる信号化学物質のエミッターであって、前記支持体がセビオライトであること、および、前記信号化学物質の制御された放出速度特性が得られるように、前記セビオライトと前記信号化学物質との間の保持能力が調整されていることを特徴とする信号化学物質のエミッター。

【請求項2】 前記保持能力が、

(1) 前記セビオライトの改変、および
 (2) 前記セビオライトと前記吸着された信号化学物質との間の圧縮度の改変のうちの1または両方の改変によって調整されていることを特徴とする請求項1に記載の信号化学物質のエミッター。

【請求項3】 前記セビオライトの改変が、

(1) セビオライトの表面カチオンの改変、および
 (2) セビオライトの比表面積の改変、

からなる群から選択される1またはそれ以上の改変であることを特徴とする請求項2に記載の信号化学物質のエミッター。

【請求項4】 前記セビオライトと前記吸着された信号化学物質との間の圧縮度の改変が、

(1) 圧縮圧の改変、および
 (2) 前記エミッターの表面／重量比の改変、

からなる群から選択される1または両方の改変であることを特徴とする請求項2に記載の信号化学物質のエミッター。

【請求項5】 前記改変がセビオライトの表面カチオンの改変を含むことを特徴とする請求項3に記載の信号化学物質のエミッター。

【請求項6】 前記表面カチオンの改変が、族IAおよびIIAの金属カチオンまたはプロトンによる、表面八面体マグネシウムカチオンの一部または全部の置換を含むことを特徴とする請求項5に記載の信号化学物質のエミッター。

【請求項7】 マグネシウムカチオンの他のカチオンによる置換レベルが0～40%であることを特徴とする請求項6に記載の信号化学物質のエミッター。

(3)

特表2002-520256

【請求項 8】 天然セビオライトを酸または塩基で処理することによって前記カチオンの置換が行われることを特徴とする請求項6に記載の信号化学物質のエミッター。

【請求項 9】 天然セビオライトを酸で処理することによって前記置換が行われることを特徴とする請求項8に記載の信号化学物質のエミッター。

【請求項 10】 天然セビオライトを硫酸で処理することによって前記置換が行われることを特徴とする請求項9に記載の信号化学物質のエミッター。

【請求項 11】 天然セビオライトを塩基で処理することによって前記置換が行われることを特徴とする請求項8に記載の信号化学物質のエミッター。

【請求項 12】 天然セビオライトを水酸化ナトリウムで処理することによって前記改変が行われることを特徴とする請求項11に記載の信号化学物質のエミッター。

【請求項 13】 前記改変がセビオライトの比表面積の改変を含むことを特徴とする請求項3に記載の信号化学物質のエミッター。

【請求項 14】 セビオライト支持体が 80 と $600\text{m}^2/\text{g}$ との間の比表面積値を得るように、前記比表面積が改変されていることを特徴とする請求項13に記載の信号化学物質のエミッター。

【請求項 15】 前記圧縮度の改変が、セビオライト支持体と信号化学物質との間の圧縮圧の改変を含むことを特徴とする請求項4に記載の信号化学物質のエミッター。

【請求項 16】 前記圧縮圧の改変がエミッターの処理中に行われることを特徴とする請求項15に記載の信号化学物質のエミッター。

【請求項 17】 前記圧縮度の改変が表面／重量比の改変を含むことを特徴とする請求項4に記載の信号化学物質のエミッター。

【請求項 18】 前記表面／重量比の改変がエミッターの処理中に行われるることを特徴とする請求項16に記載の信号化学物質のエミッター。

【請求項 19】 セビオライト部分における信号化学物質の保持能力が前記信号化学物質の制御された開放速度特性を可能にするように、セビオライトを改変する工程およびセビオライトを異なる化学物質と結合させる工程を行うことを特

(4)

特表2002-520256

微とする請求項1から18のいずれかに記載の信号化学物質エミッターの製造方法
。

【請求項20】 前記保持能力が、

- (1) 前記セビオライトの改変、および
- (2) 前記セビオライトと前記吸着された信号化学物質との間の圧縮度の改変のうちの1または両方の改変によって調整されることを特徴とする請求項19に記載の方法。

【請求項21】 前記セビオライトの改変が、

- (1) セビオライトの表面カチオンの改変、および
- (2) セビオライトの比表面積の改変、
からなる群から選択される1またはそれ以上の改変であることを特徴とする請求項20に記載の方法。

【請求項22】 前記セビオライトと前記吸着された信号化学物質との間の圧縮度の改変が、

- (1) 圧縮圧の改変、および
- (2) 前記エミッターの表面／重量比の改変、
からなる群から選択される1または両方の改変であることを特徴とする請求項20に記載の方法。

【請求項23】 前記改変がセビオライトの表面カチオンの改変を含むことを特徴とする請求項21に記載の方法。

【請求項24】 前記表面カチオンの改変が、族IAおよびIIAの金属カチオンまたはプロトンによる、表面八面体マグネシウムカチオンの一部または全部の置換を含むことを特徴とする請求項23に記載の方法。

【請求項25】 マグネシウムカチオンの他のカチオンによる置換レベルが0~40%であることを特徴とする請求項24に記載の方法。

【請求項26】 天然セビオライトを塗または塩基で処理することによって前記カチオンの置換が行われることを特徴とする請求項24に記載の方法。

【請求項27】 天然セビオライトを酸で処理することによって前記置換が行われることを特徴とする請求項26に記載の方法。

(5)

特表2002-520256

【請求項28】 天然セビオライトを硫酸で処理することによって前記置換が行われることを特徴とする請求項27に記載の方法。

【請求項29】 天然セビオライトを塩基で処理することによって前記置換が行われることを特徴とする請求項8に記載の方法。

【請求項30】 天然セビオライトを水酸化ナトリウムで処理することによって前記改変が行われることを特徴とする請求項29に記載の方法。

【請求項31】 前記改変がセビオライトの比表面積の改変を含むことを特徴とする請求項21に記載の方法。

【請求項32】 セビオライト支持体が80と600m²/gとの間の比表面積値を得るように、前記比表面積が改変されることを特徴とする請求項31に記載の方法。

【請求項33】 前記圧縮度の改変が、セビオライト支持体と信号化学物質との間の圧縮圧の改変を含むことを特徴とする請求項22に記載の方法。

【請求項34】 前記圧縮圧の改変がエミッターの処理中に行われるこ特徴とする請求項33に記載の方法。

【請求項35】 前記圧縮度の改変が表面／重量比の改変を含むことを特徴とする請求項22に記載の方法。

【請求項36】 前記表面／重量比の改変がエミッターの処理中に行われるこ特徴とする請求項34に記載の方法。

【請求項37】 農業における昆虫異常発生の制御のための請求項1から18のいずれかに記載の信号化学物質のエミッターの使用。

【請求項38】 昆虫の個体数制御、昆虫の大量捕獲、昆虫の性別の混同および誘引性殺虫トラップからなる群から選択される1またはそれ以上の技術と、異常発生制御のための請求項37に記載の信号化学物質のエミッターの使用。

【請求項39】 前記エミッターが粉末、顆粒、または集塊から選択される形態で適用される請求項37に記載の信号化学物質のエミッターの使用。

【請求項40】 前記エミッターが手動または機械的装置によって適用される請求項37に記載の信号化学物質のエミッターの使用。

(6)

特表2002-520256

【発明の詳細な説明】

【0001】

(技術分野)

本発明は農業分野に關し、特に農作物に有害な昆虫の異常発生の制御に関する。

より詳細には、本発明は制御された放出速度を有し、農作物における昆虫の異常発生の制御に有用な、信号化学物質の新規なエミッターおよびその調製方法を提供する。

【0002】

(背景技術)

昆虫の異常発生 (plague) により農作物の収穫率は激烈に減少する。殺虫剤は昆虫に対抗するための従来の方法である。しかしながら殺虫剤の使用により以下のような問題が発生する。

- ・人間および高等動物に対して有毒であるため、政府にその使用に対するさらなる制限規制を強要させること。
- ・選択性が欠如しているため、代わりに有益な昆虫または対抗すべき昆虫の自然捕食生物 (natural predators) を駆除してしまうこと。
- ・昆虫による抵抗により、効果を維持するために投与量をますます増加させる必要があること。

【0003】

これら全ての問題は、殺虫剤の製造業者がより良い製品を得るために研究開発に資金をますますつぎこむことを余儀なくするが、問題は存在し続ける。

【0004】

一方、社会は環境重視を要求するが、それと同時に高品質な農業食品を必要とし、環境秩序に基づいた新規な異常発生制御システムの開発を必要とする。

【0005】

昆虫間のコミュニケーションが基本的に、その有機体が自然に放出する特定タイプの物質、いわゆる「信号化学物質 (semiochemical substances)」(または単に semiochemicals) によって行われていることはよく知られている。

(7)

特表2002-520256

【0006】

この信号化学物質の理解とこの信号化学物質が昆虫に伝達する情報の理解が、環境秩序の開発を可能にし、昆虫の行動を制御することができる。

【0007】

上述したように、特定のメッセージを特定種の昆虫に伝達することが可能であり、これが合成信号化学物質の人工的な放出によって特定の応答を引き起こす。従つて例えば、そのメッセージが誘引するものであれば、昆虫の応答はエミッターに向かう。

【0008】

この誘引能力の利点を昆虫の行動に利用して、その制御を可能にする技術が開発されている。以下に最も重要な技術の要約を示す。

- ・制御：その目的は、害虫の異常発生を抑制し、その動向を理解し、誘引性信号化学物質のエミッターが備えられたトラップ（traps）にかかった捕獲総数によってその絶滅を確認することである。

- ・性別の混同：昆虫のレセプタ器官（receptor organs）を飽和させ、昆虫が同種や逆の性別のメンバーを見つけ出すことを妨げる、多量の信号化学物質の放出によって、昆虫の繁殖を抑制しようとする。

- ・大量捕獲：誘引性信号化学物質を有するトラップによる捕獲によって、昆虫の個体数を有意に減少させようとする。誘引剤の他には、昆虫に対して有毒な物質、不妊剤（a sexual sterilizer）、食虫性微生物（an entomopathogenic micro organism）または昆虫がそれに接着して死ぬ单なる接着剤もトラップ中に配置され得る。

【0009】

従来の殺虫剤とは対照的に、信号化学物質の低毒性、信号化学物質の高特異性（一般的に信号化学物質の作用は单一の種に向けられる）、抵抗が困難であること、および、汚染の影響が存在しないことは顕著な利点を表す。

【0010】

これらの信号化学物質の使用が有効であるためには、維持して昆虫の所望の応答を得ることができる空気中濃度が達成されるように、十分に長い期間制御され

(8)

特表2002-520256

た方法で信号化学物質を放出できる物理的な支持体を有することが必要である。

【0011】

引用された支持体はその使用が有効であるように次の二連の要求に従わなければならない。

- ・信号化学物質の十分な放出速度を提供すること。
- ・長期間の放出が可能であること。
- ・信号化学物質の分解を回避すること。
- ・汚染残留物を生成しないこと。
- ・経済的であり、かつ信号化学物質が容易に適用できること。

【0012】

市場には、ゴム隔膜 (Aldrich Co.,UK;The West Co.,Pennsylvania;Arthur H. Thomas Co.;Maavit Products,Tel Aviv,Israel) 、ポリエチレンパイプ (Shin Etsu Chemical Co.,Tokyo,Japan) 、多孔性プラスチック積層物 (Hercon Lab.Co.,New Jersey,USA) ;毛細状繊維 (Albany International,Massachusetts,USA) 、マイクロカプセル (ICI Agrochemicals,Berks,UK) のような非常に多様な放出支持体が存在するが、これらの放出支持体の中には上述の全ての要求に従うものはない。

【0013】

(発明が解決しようとする技術的課題)

それ故に上記の要求を良好に満たす支持体を有する信号化学物質のエミッターが依然として必要である。正確にはこれが、出願人が科学的研究で探求する目的である。このような研究により本発明を達成することができた。

【0014】

(その解決方法)

発明の名称にも記載されているように、本発明は制御された放出速度を有する信号化学物質の新規なエミッター、その調製方法、および農業における昆虫の異常発生の制御への適用に関する。

【0015】

(発明を実施するための最良の形態)

(9)

特表2002-520256

本発明のエミッター(emitters)は、支持体と該支持体に吸着された信号化学物質を含んでおり、上記支持体がセビオライトであること、および、上記信号化学物質の制御された放出速度特性(emission kinetics)が得られるように、セビオライトと信号化学物質との間の保持能力(retaining capacity)が調整されていることを特徴とする。

【0016】

天然セビオライトは結晶性マグネシウムシリケートである。結晶性マグネシウムシリケートは構造的には、八面体配位中、 Mg^{2+} カチオンによって結合されたシリカ四面体の薄層(laminae)で形成されている(図1参照)。薄層は0.5と1.5 μ の間の長さの繊維を形成し、繊維はSi-O-Siブリッジおよびカーボネットによって互いに結合し、約200Åの厚みを有するビーム(beams)を形成する。

【0017】

天然のセビオライトの比表面積は約200~300m²/gであり、適切な処理によってSi-O-Siブリッジが破壊され、80と600m²/gとの間に変化される。

【0018】

天然セビオライトのチャネルサイズは比較的小さく、その内部に、結晶化由来の水および末端ヒドロキシル基に起因する高い極性を有する。

【0019】

これによると信号化学物質の規則的な分子は、そのサイズおよびその極性の欠如のために、チャネル内に入るのが困難であり、結果としてたいていの場合、表面上、セビオライトに吸着する。

【0020】

セビオライトと信号化学物質との間の保持能力の調整は下記の2つの局面から行われる。

1. セビオライトの改変

2. セビオライトと吸着された信号化学物質との間の圧縮度の改変

【0021】

改変の第1グループにおいては以下に示すものが挙げられる：

・セビオライトの表面カチオンの改変

(10)

特表2002-520256

・セビオライトの比表面積の改変

[0022]

改変の第2グループにおいては以下に示すものが挙げられる：

- ・圧縮圧力の改変
- ・最終的に得られる形態の表面／重量比の改変

[0023]

次にこれらの改変のそれぞれをさらに詳細に分析する。

1、セビオライトの表面カチオンの改変により、吸着中心の数の改変およびセビオライト部分での信号化学物質の保持力の改変が可能になる。この事実の列示された実施例は、見かけ上改変された異なるセビオライトの使用により構成され、そこでは特定割合の表面八面体マグネシウムが、族IAおよび族IIBの一価または二価カチオンまたはプロトンによって置き換えられている。セビオライトの表面カチオンの改変は、酸（例えば硫酸）または塩基（例えば水酸化ナトリウム）による天然セビオライトの処理によって行われ得る。

2、信号化学物質分子の第一吸着層への固定が第二層および連続層に形成された固定よりもさらに強いことを考慮すれば、セビオライトの比表面積の改変は特に興味深い。セビオライト支持体の吸着表面の増大に伴って、信号化学物質の保持が増大する。比表面積の改変は上記項目1で示された処理と同様の処理によって行われる。比表面積値は80と600m²/gとの間で達成され得る。

3、エミッターの製造中における圧縮圧の改変は放出速度に作用し得る。従ってセビオライトが信号化学物質とともに圧縮される圧力が大きくなるほど、支持体上におけるその保持が増大し、よって放出速度が減少する。一方で低圧下での両物質の圧縮は信号化学物質の放出速度を増大させる。圧縮圧の範囲は好ましくは0.1と20T/cm²との間であり、活性物質の放出の必要性によってその圧力は選択される。

4、最終的に得られる放出製品の表面／重量比の改変もまた、信号化学物質の放出速度に作用し得る。従って表面／重量比の増大に伴って放出速度が増加し、逆に表面／重量比の減少に伴って放出速度が減少する。

[0024]

(11)

特表2002-520256

上述のように本発明のエミッターの調整に際して、上記の段落で説明した様な物理-化学変数のうちの1以上の緩やかな改変を行い、セビオライト支持体を、信号化学物質の特性や行われる処理に対する各放出速度特性の特定の必要性に適合させることができる。

【0025】

本発明のエミッターは、凝集、プレス、粉碎による乾燥などのような従来の技術（結合成分は使用されても良いしされなくても良い）によって支持体と信号化学物質とを結合することにより調製され得る。

【0026】

例えばセビオライト材料は、当該粉末材料に、セビオライト+トリメドルア(trimedure) 1gに対してジクロロメタン1~20mlの割合で、信号化学物質トリメドルアのジクロロメタン溶液を添加した後、ジクロロメタンを除去することによって添着され得る。

【0027】

このようにして得られたエミッターは、粉末、湿润粉末、顆粒、錠剤(paste)または希望の任意の幾何学的形状を有する集塊の形態で適用され得る。同様に、それらは手動でまたは任意の従来の機械的な装置を使用することによって適用され得る。

【0028】

好ましくは信号化学物質/セビオライトの割合は1と800mgとの間である。セビオライト1gに対する信号化学物質の割合は放出の必要性によって選択される。

【0029】

本発明の信号化学物質のエミッターは中でも、昆虫の個体数の制御技術、大量捕獲、性別の混同(sexual confusion)、または任意の他のタイプの誘引性殺虫トラップ(attracticide traps)、昆虫において不妊化させること、殺虫剤またはホルモン生成抑制剤などのいずれかによって、農業分野における昆虫の異常発生を処理するのに特に有用である。

【0030】

下述のように、本発明は、現在まで開発されてきたエミッターと比較して顯著

(12)

特表2002-520256

な効果を有し、農業疫病に対する環境的闘争において使用される信号化学物質の制御された耐久性のある放出を可能にする信号化学物質の新規なエミッターを提供する。上記した効果のうち、下記に示す効果を強調することができる：

- ・放出必要性および各信号化学物質の特性に対する適応。
- ・長い有効寿命を得ることができるという能力。
- ・その化学的性質上、農業用土中に混合されるので、汚染が発生しないこと。
- ・緩剤、顆粒、または粉末の形態で使用され得るので適用が容易であること。
- ・任意の支持体に適合させるために、様々な形状に圧縮することが可能であること。

[0031]

(実施例)

以下に、信号化学物質の支持体としてのセビオライトおよび改変されたセビオライト材料の使用、および所定の放出速度特性に対するそれらの適応について、幾つかの実施例を与える。なお、標準信号化学物質トリメドルア (*tert*-ブチル4-クロロ-2-メチルシクロヘキサン-1-カルボキシレート、ミバエの誘引剤、セラティティス・カビタータ (*Ceratitis capitata*)) を使用する。

[0032]

得られた様々なセビオライト支持体に吸着されたトリメドルアの放出速度特性を以下の方法により測定する。

[0033]

1. セビオライトの添着 (impregnation)

粉末状のセビオライト材料にトリメドルアのジクロロメタン溶液を添加して1時間激しく攪拌し、続いてジクロロメタンを除去することによって行う。添着されたセビオライト材料を半時間攪拌することによって均質化し、その後緩剤を形成する圧縮機で圧縮する。

[0034]

2. エアレーション (aeration) およびエージング (aging)

上記緩剤を25℃、制御されたエアレーションで45日間保つ。適切な溶媒を用いガソクスレー抽出器での抽出および定性的ガスクロマトグラフィーによって、

(13)

特表2002-520256

定期的に緩剤中に残存するトリメドルアの量を測定する。放出曲線を引いて、得られたデータによって対応する速度特性を測定する。

【0035】

トリメドルアが添着されたセビオライト材料の緩剤が内部に定期的に配置されているサーモスケット付きのエアレークを使用して正確な放出速度を測定する。制御された空気流を特定時間一定の温度で循環する。空気流の循環が行われると、空気流は吸着剤のカートリッジ、一般に、トリメドルア (TML) が保持されているSep-pak CL8を通過する。その後、カートリッジを取り外し、測定時間の間に放出されたトリメドルアの量を定量気体-液体クロマトグラフィーによって測定する。

【0036】

(実施例 1)

信号化学物質トリメドルアの制御された放出のためのセビオライトにおける表面カチオンの変化

比較される放出支持体：

-セビオライト Mg (天然)

-セビオライト H Mg、25% H⁺。八面体のMgは部分的にH⁺に交換されている。

-セビオライト Na Mg、25% Na⁺。八面体のMgは部分的にNaに交換されている。

【0037】

適切なカチオンを有するセビオライトの調整：

50°Cで30分間1.3NのH₂SO₄を用いて処理することにより、天然セビオライトからセビオライト H Mg、25%を得、その後ろ過し、水洗した。試料の結晶度をX線回折により確認する。

室温で15分間1NのNaOHを用いて天然セビオライトを処理し、オートクレープ中、200°Cで6時間処理することにより、セビオライト Na Mg、25%を得、その後ろ過および洗浄した。試料の結晶度(70%)をX線回折により測定する。

【0038】

(14)

特表2002-520256

得られた速度特性を図2に図示する：（放出速度特性に対するカチオンの影響）。交換カチオンが Na^+ のときに、最大保持（最も好ましい放出速度特性）が得られる。セビオライトH-MgはセビオライトMgほどトリメドルアを保持しない。セビオライト1gに対してトリメドルア420mgの初期量（an initial load）および圧力 $10.2\text{t}/\text{cm}^2$ で圧縮された直径5mm、重量0.09gの錠剤でテストを行う。

【0039】

（実施例2）

トリメドルアの制御された放出のための吸着層の改変

与えられたトリメドルアの量について異なる比表面積を有するセビオライトを使用して、第1または第2の吸着層に吸着されたトリメドルアの割合によってトリメドルアの放出速度を制御できる。初期量としてセビオライト1gに対して420mgのTMLを使用する。

【0040】

比較される放出支持体：

- H'を有するセビオライトH-Mg 25%。比表面積 $400\text{m}^2/\text{g}$ 。第2層におけるTMLの割合：33%。

- セビオライトH。比表面積 $520\text{m}^2/\text{g}$ 。第2層におけるTMLの割合：13%。

【0041】

適切な表面を有するセビオライトの調製：

H'を有するセビオライトH-Mg 25%を上記の実施例の方法によって調製する。セビオライトHは、 $3\text{NH}_2\text{SO}_4$ を用いる以外はセビオライトH-Mg 25%と同様に調製される。

【0042】

得られた速度特性を図3に図示する：（放出速度特性に対する吸着層の影響）。吸着表面が増大し、それにより第2層に吸着されたトリメドルアの割合が減少するほど、保持の増大が観測される。セビオライト1gに対してトリメドルア420mgの初期量および直径5mm、重量0.09gの錠剤でテストを行う。このようにして第1層および第2層における信号化学物質の比率を変化させることによって放出速度特性を調整することができます。

(15)

特表2002-520256

【0043】

(実施例3)

信号化学物質トリメドルアの制御された放出のためのセビオライトの圧縮圧力の改变

放出支持体：

—セビオライトH Mg 25%を140mgのトリメドルアで添着し、圧力3.1および10.2T/cm²で圧縮する。このセビオライトは実施例1で説明されている。

【0044】

得られた速度特性を図4に図示する：(放出速度特性に対する圧縮圧の影響)。圧縮圧が増大すると、保持の増大が観測される。セビオライト1gに対してトリメドルア140mgの初期量および直径5mm、重量0.09gの錠剤でテストを行う。上記セビオライトを用いて得られる速度特性は適切であり、かつ長い持続時間を有することが、下記の実施例において確認される。

【0045】

(実施例4)

従来のエミッターの放出に対する、改変セビオライトのトリメドルア放出における効果(捕獲数およびエミッターの有効寿命)の比較

(穴あき容器)

比較される放出支持体：上述したセビオライトNa Mg 25%を使用する。通常のプラスチック容器を参照用として使用する。

適用方法：セビオライトにトリメドルアを配合し、タブレットを圧力2T/cm²で形成する。セビオライト錠剤の初期量はトリメドルア500mgであり、錠剤は2.9gである。容器にも500mgで配合する。接着剤が含浸された交換可能なフロアを有するイエローデルタルトラップ(yellow delta traps)を使用する。トラップを1つおきの木(トラップ間の距離10m)に配置する。定期的に捕獲物を数え、エミッターを集めて研究室で抽出および定量的気体-液体クロマトグラフィによって分析する。

【0046】

比較系の放出速度特性を図5に図示する：(トリメドルア放出についての、孔

(16)

特表2002-520256

あき容器に対するセビオライトNa-Mg-25%のフィールド速度特性の比較)。より多くののはえを捕獲し、より長期間活性を維持するセビオライトNaの最も好ましい速度特性が観測されている。セビオライトNaについては185日間の有効寿命(有効期間)が得られる。容器は明らかにこれに劣り、有効寿命は132日間である。

【図面の簡単な説明】

【図1】異なるタイプの原子を次の記号で表した(シリコン:・、マグネシウム:三角形、酸素:○、水酸基:円内に・、および結晶化水:円内に+)天然セビオライトの化学的構造の図である。

【図2】異なるセビオライトを次の記号で表した(セビオライトNa-Mg-25%:三角形、セビオライトMg:×、およびセビオライトH-Mg-25%:四角形)実施例1によるトリメドルア放出速度特性に関するカチオンの影響を示すグラフである。

【図3】異なるセビオライトを次の記号で表した(セビオライトH、第2層、13%:四角形、およびセビオライトH-Mg-25%、第2層、33%:×)実施例2によるトリメドルア放出速度特性に関する吸着層の影響を示すグラフである。

【図4】異なる圧力を次の記号で表した(圧力3.1T/cm²:四角形(対角線が×になる形)、および圧力10.2T/cm²:ひし形(対角線が+になる形))実施例3によるトリメドルア放出速度特性に関する圧縮圧力の影響を示すグラフである。

【図5】セビオライトNa-Mgを・、容器を四角形で表した、実施例4における従来のエミッターと比較した本発明によるセビオライトのフィールド速度特性の比較グラフである。

(17)

特表2002-520256

[図1]

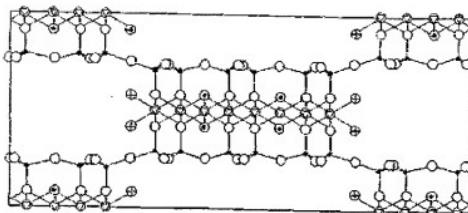


FIG.1

[図2]

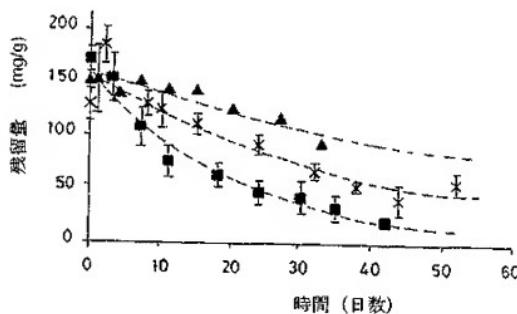


FIG. 2

(18)

特許 2002-520256

[図 3]

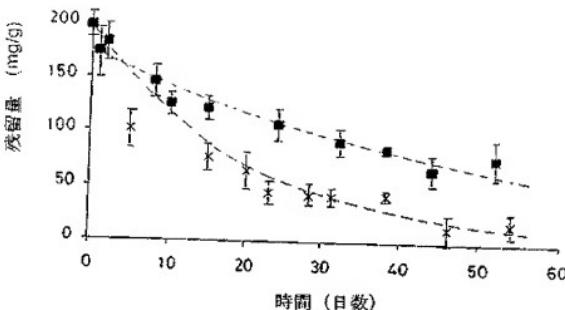


FIG.3

[図 4]

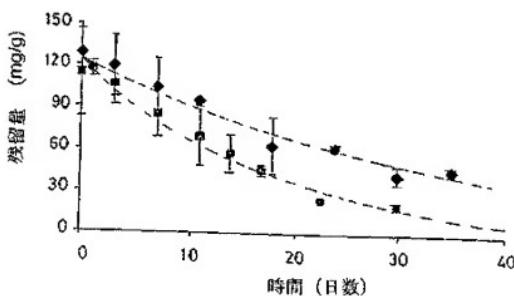


FIG.4

(19)

特表2002-520256

[図5]

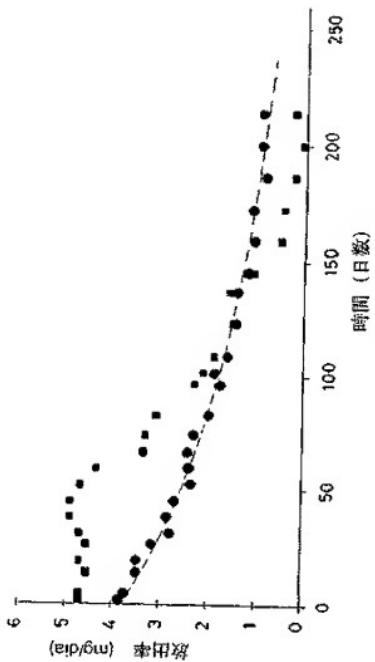


FIG. 5

(20)

特表2002-520256

[国際調査報告]

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/ES 99/00217A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER⁴:

IPC6 : A 01N 25/18

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classifications and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC6 : A 01N

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base used, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category ⁵	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 4323556 A (A.DAL-MORO et al) 06 April 1982 (06.04.82)	
A	WO 8704591 A (FERMONE CHEMICALS INC.) 13 August 1987 (13.08.87)	
A	US 5035886 A (P.M.CHAKRABARTI et al) 30 July 1991 (30.07.91)	



Further developments are based on the examination of Box C.



See patent family annex.

- ⁴* Search categories of cited documents
- ⁵*^a document disclosing the general state of the art, which is not mentioned to be of particular relevance
- ⁵*^b earlier document not published or filed before the international filing date
- ⁵*^c document which may serve as prior art, especially one which is cited to support the publication date of earlier claims or for a special reason (as specified)
- ⁵*^d document relating to an end product, use, addition or otherwise
- ⁵*^e document published after the international filing date but before the priority date referred to in the claim
- ⁵*^f later document published after the international filing date or prior to the date of publication of the application but containing information which is not directly relevant to the invention
- ⁵*^g document of technical relevance; the claimed invention cannot be considered novel or non-obvious in view of the disclosure or evidence of such documents (annex to table above)
- ⁵*^h document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or non-obvious in view of the disclosure or evidence of such documents (annex to table above)
- ⁵*ⁱ document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or non-obvious in view of the disclosure or evidence of such documents (annex to table above)
- ⁵*^j document annexed to the annex of the priority application

Date of completion of the international search 19 October 1999 (19.10.99)	Date of mailing of the International Search Report 02 November 1999 (02.11.99)
Name and mailing address of the IAS/ European Patent Office Postfach No.	Authorized officer Telephone No.

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1992)

(21)

特表2002-520256

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on prior art by members

International Application No.
PCT/EP98/00217

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 4323556 A	06.04.1982	AU 64680/80 A AU 544274B BE 836377A BR 8007829A CA 1168376 A CH 645242 A DE 3044220A DK 4995180 A DK 159181B,C EG 14811A FR 2473847A,B GB 2067406A,B IE 50671B IL 61559 A IN 152198A IT 8019390 AO IT 3125711 A JP 56104802 A JP 1011001B KE 3327 A LU 82969 A LU 8006397A SU 1314945 A ZA 8097390 A	30.07.1981 23.05.1985 27.05.1981 04.08.1981 12.06.1984 28.09.1984 06.09.1981 24.07.1981 17.09.1990 30.06.1985 24.07.1981 30.07.1981 11.06.1986 30.01.1981 12.11.1983 23.01.1980 11.06.1986 20.08.1981 23.02.1989 16.09.1983 04.06.1981 17.08.1981 30.05.1987 25.11.1981
WO 8704591 A	13.08.1987	AU 7021687A CN 87101769A CN 10369517B GR 870154A IP 1500745T IP 2522596B US 4725534A ZA 8700071 A	25.08.1987 16.09.1987 14.02.1996 09.06.1987 16.03.1989 07.08.1996 04.10.1988 30.12.1987
US 5035886 A	30.09.1991	US 4957787A US 4959208A US 5011645A	18.09.1990 25.09.1990 10.12.1991

Form PCT/ISA/220 (patent family annex) (Rev. 1995)

(22)

特表2002-520256

フロントページの続き

- (72)発明者 アベリノ・ゴルマ・カノス
 スペイン、エ-46022パレンシア、ナラン
 ホス、ウニベルシダド・ボリテクニカ・
 デ・パレンシア、コンセホ・スペリオー
 ル・デ・インベスティガシオネス・シエン
 ティフィカス、インスティトゥト・デ・テ
 クノロジア・キミカ
- (72)発明者 フアン・ムニタス・パリャレス
 スペイン、エ-46022パレンシア、ナラン
 ホス、ウニベルシダド・ボリテクニカ・
 デ・パレンシア、コンセホ・スペリオー
 ル・デ・インベスティガシオネス・シエン
 ティフィカス、インスティトゥト・デ・テ
 クノロジア・キミカ
- (72)発明者 エドゥアルド・ブリモ・イュフェラ
 スペイン、エ-46022パレンシア、ナラン
 ホス、ウニベルシダド・ボリテクニカ・
 デ・パレンシア、コンセホ・スペリオー
 ル・デ・インベスティガシオネス・シエン
 ティフィカス、インスティトゥト・デ・テ
 クノロジア・キミカ

Fターム(参考) A4011 AC07 BA01 BB06 BC18 BC20
 DA02 DA03